

Федеральное государственное автономное образовательное учреждение  
высшего образования «Уральский федеральный университет имени первого  
Президента России Б.Н. Ельцина»



На правах рукописи

Васянович Максим Евгеньевич

**Совершенствование методов контроля радиоактивных  
веществ в газовой среде при эксплуатации  
ядерных реакторов**

01.04.01 – Приборы и методы экспериментальной физики

АВТОРЕФЕРАТ

диссертации на соискание ученой степени

кандидата физико-математических наук

Екатеринбург – 2019

**Работа выполнена** на кафедре экспериментальной физики Физико-технологического института федерального государственного автономного образовательного учреждения высшего образования «Уральский федеральный университет имени первого Президента России Б. Н. Ельцина».

**Научный руководитель:** доктор технических наук, профессор  
**Жуковский Михаил Владимирович**

**Официальные оппоненты:** **Дрейзин Валерий Элезарович**,  
доктор технических наук, профессор,  
ФГБОУ ВО «Юго-Западный государственный университет», г. Курск,  
директор центра коллективного пользования  
радиационных измерений научно-исследовательского института  
радиоэлектронных систем

**Дьяков Александр Андреевич**,  
доктор технических наук,  
АО «Институт реакторных материалов»,  
г. Заречный, Свердловская обл.,  
эксперт отдела научного и инновационного  
развития

**Ташлыков Олег Леонидович**,  
кандидат технических наук, доцент,  
ФГАОУ ВО «Уральский федеральный университет имени первого Президента России Б.Н. Ельцина», доцент кафедры «Атомные станции и возобновляемые источники энергии»

**Защита состоится** «12» декабря 2019 г. в 17:00 часов на заседании диссертационного совета УрФУ 01.03.15, по адресу: 620002, г. Екатеринбург, улица Мира, 19, ауд. И-420 (зал Ученого совета).

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке и на сайте ФГАОУ ВО «Уральский федеральный университет имени первого Президента России Б.Н. Ельцина», <https://dissovet2.urfu.ru/mod/data/view.php?d=12&rid=347>.

Автореферат разослан «\_\_» ноября 2019 г.

Ученый секретарь  
диссертационного  
совета

Ищенко Алексей Владимирович

## ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

**Актуальность темы.** Контроль радиоактивных веществ в атмосфере на предприятиях, эксплуатирующих ядерный реактор (ЯР), является неотъемлемой частью программы обеспечения безопасности для персонала, населения и окружающей среды. Выполнение корректных измерений радиоактивных веществ в воздухе рабочей зоны необходимо для получения достоверной информации об облучении персонала. Мониторинг выбросов предприятий требуется для корректной оценки эффективной дозы критической группы населения и воздействия на окружающую среду. В программу радиационного контроля атмосферы должны входить измерения объемной активности (ОА) дозообразующих радионуклидов, оценка распределения по размерам аэрозольных частиц и химических соединений радиоактивных веществ. Отсутствие подобной информации может приводить к завышению или занижению оценки доз облучения персонала и населения.

Для выполнения радиационного контроля радиоактивных частиц необходимо использовать приборы, обеспечивающие их разделение и детектирование в соответствии с их диффузионными и инерционными свойствами, в частности, диффузионные батареи, импакторы и аэрозольные фильтры. Определение химических соединений радионуклидов возможно при использовании сорбционно-фильтрующих материалов (СФМ). Широко применяемый метод улавливания и анализа радиоактивных веществ на основе СФМ был разработан в конце 1950-х гг. Усилиями сотрудников лаборатории аэрозолей НИФХИ им. Л. Я. Карпова были разработаны различные аналитические фильтры для контроля как радиоактивных аэрозолей, так и различных летучих соединений (*Петрянов И. В., 1969; Борисов Н. Б., 1978*). В это же время был разработан способ разделения радиоактивных веществ на размерные фракции при помощи многокаскадных инерционных устройств (импакторы) (*Marple, 1978*). Применение вышеупомянутых методов в изучении радиоактивных веществ в атмосфере на предприятиях с ЯР выявило ряд недостатков, определяемых их несоответствием непрерывно ужесточающимся требованиям нормативных документов. Одним из таких несоответствий является отставание сложившихся методов контроля радиоактивного йода в атмосферных выбросах ЯР. Для устранения этого несоответствия требуется разработать простой и доступный метод определения различных химических соединений радиоактивного йода в атмосферных выбросах АЭС и других организаций, эксплуатирующих ЯР.

Использование импакторов для оценки распределения активности по размерам аэрозольных частиц в воздухе рабочей зоны ЯР имеет ограничения при наличии в атмосфере ультрадисперсных аэрозольных частиц, размерный диапазон которых плохо изучен на сегодняшний день.

**Степень разработанности темы исследования.** Существующие методы радиационного контроля газоаэрозольной смеси для оценки радиационной нагрузки при ингаляционном поступлении в организм, имея свои преимущества и недостатки, не дают в полной мере представления о физико-химических свойствах контролируемой среды. В таких ситуациях оценка эффективной дозы выполняется консервативно, с использованием рекомендуемых коэффициентов дозовых переходов, что может привести к необоснованному завышению эффективной дозы как на персонал, так и на население. Отсутствие простого и доступного метода определения физико-химических свойств контролируемой среды может стать основой для совершенствования методов радиационного контроля, которые позволят выполнять требования вновь утвержденных нормативно-правовых актов.

Требования вновь утвержденных нормативно-правовых актов являются основой для усовершенствования существующих методов радиационного контроля и получения сведений о газоаэрозольной смеси при эксплуатации ЯР.

**Объектом исследования** является газоаэрозольная смесь, которая создается при эксплуатации ЯР и является негативным фактором для персонала и населения с точки зрения ингаляционного поступления в организм.

**Предметом исследования** являются методы радиационного контроля для определения физико-химических свойств радиоактивных веществ в газоаэрозольной смеси.

**Целью диссертационной работы** является повышение достоверности информации о физико-химических свойствах радиоактивных веществ путем использования простых, доступных и серийновыпускаемых пробоотборных устройств, которые позволят с минимальными трудозатратами получить сведения о газоаэрозольной смеси при эксплуатации ЯР.

В соответствии с поставленной целью в работе **решены следующие задачи:**

1. Разработать метод математической обработки экспериментальных данных для определения вклада различных форм радиоактивного йода в атмосфере в суммарную объемную активность этого радионуклида.

2. Выполнить оценку эффективной дозы для населения, исходя из доли различных химических соединений радиоактивного йода в выбросах предприятий, эксплуатирующие разные ЯР.

3. Получить информацию о распределении активности дочерних продуктов распада техногенных инертных газов Хе-138 и Кр-88 по размерам аэрозольных частиц.

4. Выполнить оценку эффективной дозы за счет ингаляционного поступления в организм ультрадисперсных аэрозольных частиц с активностью дочерних продуктов распада техногенных инертных газов Хе-138 и Кр-88.

5. Определить степень влияния диффузионного осаждения ультрадисперсных частиц на каскадный импактор и разработать метод устранения данного эффекта.

**Научная новизна исследования:** в диссертации получены следующие результаты, характеризующиеся научной новизной:

1. Метод контроля радиоактивного йода в газоаэрозольных выбросах ЯР, базирующийся на одновременном определении доли объемной активности аэрозольной и газовой компонент различных химических соединений радиоактивного йода.

2. Метод повышения точности определения эффективной дозы от ингаляционного поступления радиоактивных веществ в организм при эксплуатации ЯР, основанный на получении информации о распределении активности продуктов распада смеси инертных радиоактивных газов техногенного происхождения на ультрадисперсных аэрозольных частицах с активностным медианным термодинамическим диаметром (АМТД) в диапазоне от 0,5 до 50 нм.

3. Учет влияния ультрадисперсных аэрозолей на результаты измерений распределения активности по размерам частиц, полученные с помощью метода инерционного осаждения, который основан на раздельном осаждении частиц разных размеров.

#### **Теоретическая и практическая значимость исследования**

Разработана и аттестована методика одновременного определения объемной активности аэрозольной и газовой компонент различных химических соединений радиоактивного йода в газоаэрозольных выбросах ЯР. Методика позволяет определить вклад в суммарную объемную активность радиоактивного йода аэрозольной фракции и легкосорбируемых и трудносорбируемых газообразных соединений. Разработан и аттестован программный код, реализующий данную методику.

Результаты экспериментального определения распределения аэрозольных частиц по размерам, включая ультрадисперсную фракцию, позволяют снизить неопределенность и устранить излишний консерватизм при оценке доз облучения респираторного тракта человека на рабочих местах предприятия, эксплуатирующего ЯР.

**Методы исследования.** Для решения поставленных задач в работе использовались методы регрессионного анализа измеренных данных с использованием аппроксимирующей модели для оценки однородности экспериментальных данных и алгоритм для нахождения оценок максимального правдоподобия параметров аэрозольных частиц разных размеров. Активность улавливающих элементов

пробоотборных устройств измерялась с помощью бета-радиометрии и гамма-спектрометрического анализа.

### **Положения, выносимые на защиту**

**Первое защищаемое положение.** Метод отдельного определения объемной активности различных фракций радиоактивного йода в газоздушном смеси в виде аэрозолей, легко- и трудносорбируемых газообразных соединений, позволяющий уменьшить неопределенность оценки эффективной дозы в газоаэрозольных выбросах ядерного реактора.

**Второе защищаемое положение.** Метод исследования радиоактивных аэрозолей в реакторном зале ядерной установки, состоящий в отдельном измерении активности фракций аэрозольных частиц по размерам, включая высокодисперсные фракции, определяемые с использованием диффузионной батареи экранного типа, позволяющий повысить точность оценки ожидаемой эффективной дозы персонала при ингаляционном поступлении по сравнению со стандартным подходом.

**Третье защищаемое положение.** Метод учета вклада ультрадисперсных частиц размером менее 10 нм в отклик улавливающих элементов инерционных устройств, с использованием сетчатых экранов, устанавливаемых перед улавливающими элементами импактора, позволяющий уменьшить неопределенность оценки распределения объемной активности по размерам аэрозольных частиц.

**Апробация работы.** Результаты диссертационной работы докладывались и обсуждались на следующих научных конференциях: Четвертая международная конференция RAD 2016 (Ниш, Сербия 2016), XXXIII Урало-Сибирский междисциплинарный семинар (Заречный, 2016), Восьмая Международная конференция по защите от радона (Прага, 2016), Всероссийская конференция «Биосферная совместимость атомной энергетики» (Екатеринбург, 2017), XI Петряновские и П Фуксовские чтения (Москва, 2017).

**Публикации.** По материалам диссертационной работы опубликовано 12 научных работ, в том числе 7 статей в научных журналах из перечня ВАК, из них 6 статей индексируются в системе Web of Science, 1 свидетельство о регистрации программы для ЭВМ, 4 статьи в трудах международных конференций и других изданиях.

**Структура и объем работы.** Диссертация состоит из введения, пяти глав, заключения, списка литературы. Работа изложена на 109 страницах текста, содержит 19 таблиц и 32 рисунка. Список литературы включает 113 источников, в том числе 52 на английском языке.

## СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

**Во введении** обоснована актуальность работы, сформирована цель и научная новизна, теоретическая и практическая значимость результатов исследований, основные положения, выносимые на защиту.

**В первой главе** представлен обзор существующих приборов и методов контроля радиоактивных веществ в газовой среде на предприятиях, эксплуатирующих ЯР. Показано, что изменившиеся требования в нормативных документах по контролю физико-химических свойств газовой среды и учет особенностей технологий, формирующих состав газовой смеси, требуют повышения достоверности получаемой информации об её химическом и дисперсном составе. Сформирована практическая направленность работы, цель и задачи диссертационного исследования.

**Во второй главе** представлена информация о материалах, методах и аппаратуре для определения ОА радиоактивных веществ в атмосфере предприятий, эксплуатирующих ЯР. Для оценки ОА радиоактивных веществ и распределения частиц по размерам применялись следующие приборы:

- диффузионная батарея экранного типа, разработанная в Институте промышленной экологии УрО РАН;
- аналитические СФМ отечественных производителей;
- многокаскадные импакторные устройства с различным количеством улавливающих элементов (АИП-2, производства НПП «Доза», импактор Южно-Уральского института биофизики и Марк-3 Гриффитского университета).

Для определения радионуклидного состава изучаемой газовой смеси каждый СФМ подвергался неразрушающему анализу с использованием гамма-спектрометрической установки на основе детектора из особо чистого германия производства Canberra. Улавливающие элементы каскадных импакторов и диффузионной батареи анализировались с помощью методов альфа- и бета-радиометрии с использованием радиометров БДПА-01 и КРК-1 соответственно. Данный подход использовался с целью оперативного определения суммарного показателя скорости счета с улавливающих элементов короткоживущих дочерних продуктов распада.

**В третьей главе** представлено описание модернизированного подхода к определению ОА различных химических соединений радиоактивного йода в газовой смеси, который может применяться на предприятиях, эксплуатирующих различные типы ЯР. Изучение разделения аэрозольных и газообразных соединений йода в пакете производится с помощью аэрозольного фильтра (АФА-РМВ) и семи сорбционных фильтров с одинаковым количеством сорбента (АФА-СФМ).

В процессе отбора радиоактивного йода фильтры размещаются следующим образом: первым по направлению потока устанавливали аэрозольный фильтр типа АФА-РМП, затем семь пронумерованных угольных фильтров. Фильтр АФА-РМВ не улавливает молекулярный и органический газообразный йод, но улавливает аэрозольную фракцию с эффективностью более 99 %. Набор сорбционных фильтров АФА-СФМ позволяет максимально уловить легкосорбируемую (молекулярную) фракцию йода на первом фильтре и определить активность трудносорбируемой (органической) фракции на семи фильтрах. Для обработки результатов измерений активность изотопов йода на каждом фильтре должна быть пересчитана к окончанию отбора пробы с учетом распада.

Распределение активности в последовательности угольных фильтров соответствует распределению фракций газообразных соединений йода, обладающих разной скоростью гетерогенной химической реакции. Общий вид уравнения, характеризующего распределение активности трудносорбируемой фракции радиоактивного йода в последовательности фильтров, подчиняется распределению Больцмана и имеет зависимость экспоненциального вида:

$$A_{\text{ТС}i} = B_{\text{ТС}} e^{(-\lambda_{\text{ТС}} \cdot i)}, \quad (1)$$

где  $A_{\text{ТС}i}$  – активность трудносорбируемых соединений йода на фильтре  $i$ -го набора, Бк;  $B_{\text{ТС}}$  – показатель трудносорбируемой фракции йода, Бк;  $\lambda_{\text{ТС}}$  – показатель скорости гетерогенной реакции трудносорбируемой фракции йода, отн. ед.;  $i$  – порядковый номер ( $i \geq 1$ ) сорбирующего фильтра в наборе.

Для расчета коэффициентов  $B_{\text{ТС}}$  и  $\lambda_{\text{ТС}}$  в формуле (1) используются результаты измерения активности со второго по седьмой сорбционных фильтров, содержащих только трудносорбируемые фракции йода. Коэффициенты ( $B_{\text{ТС}}$  и  $\lambda_{\text{ТС}}$ ) в формуле (1) рассчитываются методом наименьших квадратов. Значения коэффициентов  $B_{\text{ТС}}$  и  $\lambda_{\text{ТС}}$  позволяют определить соотношение легкосорбируемой и трудносорбируемой фракций йода в выбросах реакторных установок.

Для расчета трудносорбируемой фракции йода на первом фильтре в формулу (1) подставляются численные значения  $B_{\text{ТС}}$  и  $\lambda_{\text{ТС}}$  и значение  $i = 1$

$$A_{\text{ТС}1} = B_{\text{ТС}} e^{(-\lambda_{\text{ТС}})}. \quad (2)$$

Разница общей активности на первом фильтре набора СФМ и активности трудносорбируемой фракции позволяет оценить активность легкосорбируемой фракции йода.

При неполном поглощении фильтрами активность не уловленной трудносорбируемой фракции йода определяется по формуле:

$${}^{\text{неулов}}_{\text{ТС}} A = A_{\text{ТС}} - \sum_{i=1}^7 A_{\text{ТС}i}, \quad (3)$$

где  $A_{\text{ТС}}$  – трудносорбируемая фракция йода с учетом неуловленной активности, Бк;  $\sum_{i=1}^7 A_{\text{ТС}i}$  – активность трудносорбируемой фракции на всех фильтрах, Бк.

Трудносорбируемая фракция йода, с учетом не уловленной доли, определяется по формуле:

$$A_{\text{тс}} = \frac{B_{\text{тс}}}{e^{(\lambda_{\text{тс}})t} - 1}. \quad (4)$$

На исследовательской реакторной установке ИВВ-2М, расположенной в АО «Институт реакторных материалов» города Заречный, была проведена серия экспериментов с наборами аналитических СФМ и определено соотношение между различными соединениями радиоактивного йода в воздухе. Типичное распределение радиоактивного йода I-131, прошедшего через набор СФМ, представлено на рисунке 1.

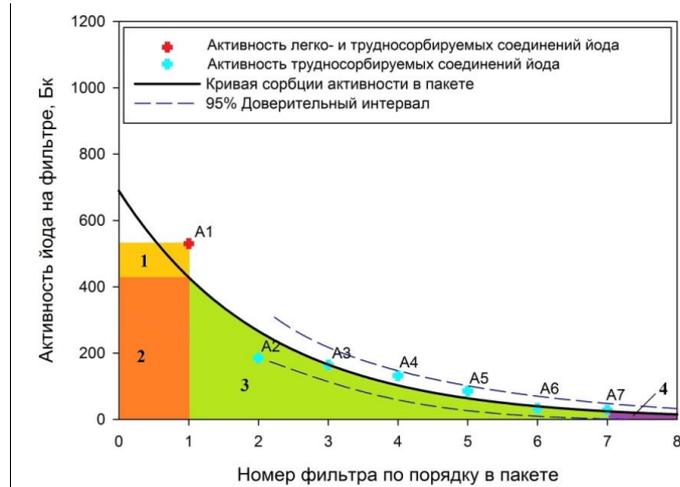


Рисунок 1 – Типовое распределение радиоактивного I-131, уловленного на фильтрах

По оси абсцисс представлены порядковые номера фильтров в наборе, по оси ординат – значения абсолютной активности радиоактивного I-131 на каждом фильтре из набора, полученные по результатам гамма-спектрометрического анализа. Представленные на графике области характеризуют соотношение различных соединений радиоактивного йода, уловленных набором СФМ:

- область 1 характеризует легкосорбируемую фракцию на фильтре 1;
- область 2 характеризует трудносорбируемую фракцию на фильтре 1;
- область 3 характеризует трудносорбируемую фракцию на фильтрах 2-7;
- область 4 характеризует долю не уловленной фракции.

В условиях малых количеств радиоактивного йода в атмосфере ИВВ-2М оптимальное время для выполнения отбора проб воздуха составляет не менее 24 ч. При выполнении радиационно-технического обследования источников выбросов АЭС АО «Концерн Росэнергоатом» соотношение форм изотопа I-131 в штатных выбросах ЯР ряда российских АЭС и атмосферы подреакторного пространства ИВВ-2М представлены в Таблице 1.

Таблица 1 – Соотношение форм и химических соединений I-131 в результате штатной работы ядерного реактора АЭС и ИВВ-2М, %

Наименование АЭС (тип реактора)	Аэрозоли, содержащие $^{131}\text{I}$	Газообразные соединения $^{131}\text{I}$		
		легкосорбируемые	трудносорбируемые	
			уловленные	неуловленные
АО ИРМ (ВВЭР)	16,0	16,5	57,0	10,5
Балаковская АЭС* (ВВЭР)*	33,0	44,6	17,3	5,1
Курская АЭС (РБМК)	16,2	6,9	74,9	2,0
Смоленская АЭС (РБМК)	31,4	3,1	61,0	4,5

\* Установлено только в период планово-предупредительного ремонта энергоблока № 2

Подтверждение однородности сорбируемой фракции йода выполнено по критерию, полученному на основе регрессионного анализа экспериментальных данных с использованием аппроксимирующей модели. Эти результаты представлены на рисунке 2.

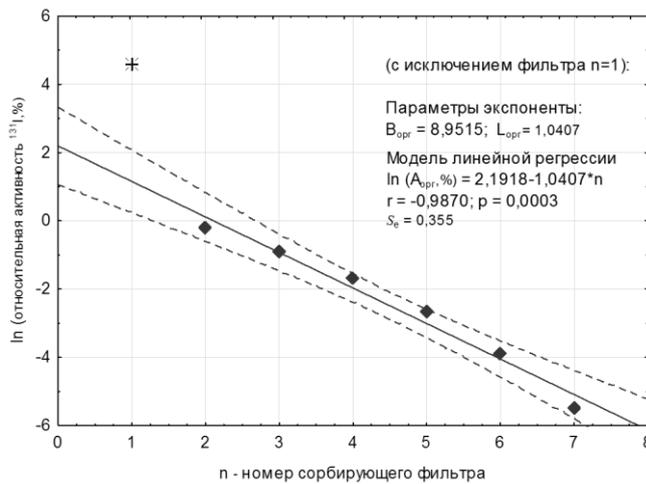


Рисунок 2 – Результаты моделирования распределения активности I-131 по фильтрам в пакетах АФА-СФМ-10

Для пакета с сорбционно-фильтрующим материалом оценены параметры экспоненциальной модели распределения активности по фильтрам I-131, а также определены 95%-й доверительный интервал для линейной регрессии, построенной по логарифмированным значениям относительных активностей с исключением из расчетов первого фильтра.

Полученные соотношения активности I-131 по формам и соединениям в атмосфере ИВВ-2М и в выбросах российских АЭС позволяют определить кратность завышения эффективной дозы облучения населения при консервативной оценке в сравнении с реальной дозой. Если принять во внимание различия дозовых коэффициентов (в 2,5 и 1,3 раза меньше, чем для элементарной формы  $\text{I}_2$ ) для аэрозолей и трудносорбируемых соединений этого изотопа соответственно, то эффективная доза может быть завышена:

- для АО «ИРМ» в 1,3 раза;
- для Балаковской АЭС в 1,3 раза,
- для Курской АЭС в 1,4 раза;
- для Смоленской АЭС в 1,5 раза.

**В четвертой главе** представлены результаты определения распределения радиоактивных аэрозолей по размерам в воздухе рабочей зоны реакторной установки ИВВ-2М.

Данные были получены при помощи диффузионной батареи каскадного типа, разработанной в радиационной лаборатории Института промышленной экологии УрО РАН. Принцип действия батареи основан на осаждении радиоактивных аэрозолей на улавливающих элементах (в виде латунных сетчатых экранов) за счет броуновского движения в атмосфере. Используемый набор сетчатых экранов (диаметр проволоки 65 мкм, ширина раскрытия ячейки 100 мкм, плотность материала 8,5 г/см<sup>3</sup>) позволяет определять размер аэрозольных частиц с АМТД в диапазоне 0,1 – 100 нм.

Экспериментальные данные были получены с помощью диффузионной батареи с набором из двадцати латунных сеток, со средней линейной скоростью воздуха 0,25 м/с. Относительная влажность исследуемой атмосферы находилась в диапазоне от 30 до 40 %, температура – от 25 до 30 °С. Вероятность проницаемости на уровне 0,5 для аэрозольных частиц через такой набор сетчатых экранов находится в диапазоне от 1,7 до 17 нм. Для улавливания более крупных аэрозольных частиц и определения радионуклидного состава осевших аэрозолей после набора сетчатых экранов устанавливается аналитический фильтр типа АФА-РСП.

Активность фильтров измерялась на гамма-спектрометрической установке с полупроводниковым детектором с кристаллом из особо чистого германия фирмы Canberra. Активность улавливающих элементов диффузионной батареи определялась с помощью штатного бета-радиометра КРК-1. Радионуклидный состав аэрозолей в воздухе рабочей зоны реакторного зала ИВВ-2М представлен в основном Cs-138 и Rb-88.

Для определения ОА на каждом улавливающем элементе была измерена эффективная кривая распада всех радионуклидов, осевших на улавливающем элементе пробоотборного устройства. Средний эффективный период полураспада радионуклидов для смеси радиоактивных аэрозолей в атмосфере реакторного зала ИВВ-2М составил  $23,1 \pm 0,8$  мин. Установленное значение эффективного периода полураспада позволило восстановить распределение активности на улавливающих элементах к моменту окончания отбора пробы.

Интерпретация данных скорости счета с каждого улавливающего элемента диффузионной батареи была выполнена при помощи инверсии измерений посредством методов максимизации ожидания (*Maher E., 1985*) и наименьших квадратов (*Raabe O., 1978*).

На рисунке 3, в таблицах 3 и 4 представлено типовое распределение активности радионуклидов Cs-138 и Rb-88 по размерам аэрозольных частиц в атмосфере реакторного зала ИВВ-2М.

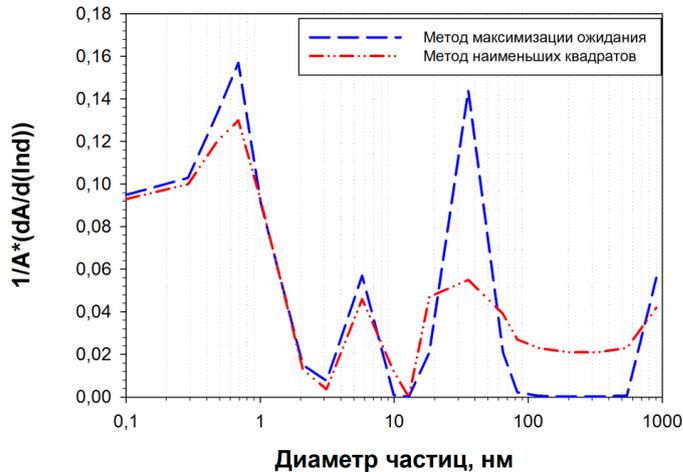


Рисунок 3 – Типовое распределение активности радионуклидов Cs-138 и Rb-88 по размерам аэрозольных частиц

Таблица 3 – Средние значения объемной активности аэрозольных частиц, полученные по результатам экспериментов с батареями из 20 сеток (65/100/8,5) в реакторном зале

Параметр	Средняя суммарная активность на сетках, Бк/м <sup>3</sup>	Средняя суммарная активность на диффузионной батарее, Бк/м <sup>3</sup>	Средняя доля активности на сетках, отн. ед.
20 сеток типа (65/100/8,5)	920 ± 180	3900 ± 880	0,25 ± 0,03

Таблица 4 – Средние значения параметров восстановленных распределений

Мода	АМТД, нм	Доля в активности на сетках, отн. ед.	Повторяемость моды в экспериментах, %
Восстановление с помощью метода максимизации ожидания			
Мода 1	0,6 ± 0,2	0,10 ± 0,02	100
Мода 2	6,9 ± 0,8	0,04 ± 0,01	100
Мода 3	45,8 ± 2,6	0,16 ± 0,03	100
Восстановление с помощью метода наименьших квадратов			
Мода 1	0,6 ± 0,1	0,09 ± 0,01	100
Мода 2	7,3 ± 0,2	0,04 ± 0,01	100
Мода 3	51,3 ± 3,1	0,06 ± 0,01	100

Примечание: ± указано стандартное отклонение от среднего значения.

Моды с активностным медианным термодинамическим диаметром ~ 0,6 и 7,2 нм представляют собой малые радиоактивные молекулярные кластеры и ядра нуклеации аэрозолей. Такие мелкие частицы могут создаваться только в процессе радиоактивного распада инертных газов, которые выходят наружу из пространства под реакторной плитой ИВВ-2М. Мода с АМТД 50 нм представляет собой аэ-

розоли конденсационного происхождения. Эти радиоактивные аэрозоли образуются в процессе оседания активности на частицах пыли и пара, находящихся в атмосфере реакторного зала. Интерпретация полученных данных методами максимизации ожидания и наименьших квадратов показала сопоставимые результаты. Доля радиоактивных аэрозолей, осевших на сетчатых элементах диффузионной батареи, составляла 25 – 30 %. Полученные результаты демонстрируют, что рекомендуемые размеры радиоактивных аэрозолей СанПин 2.6.1.2523-09 (НРБ-99/09) и ICRP 130 для Cs-138 и Rb-88 приводят к занижению эффективной дозы при ингаляционном поступлении в 1,1 раза (согласно подходу СанПин 2.6.1.2523-09) и к завышению в 1,8 раза (согласно подходу ICRP 130) при использовании коэффициентов с активностным медианным аэродинамическим диаметром 1 мкм и 5 мкм соответственно.

**В пятой главе** представлены результаты оценки влияния ультрадисперсных аэрозолей на измерения, выполняемые при помощи каскадных импакторов. В главе показано, что присутствие аэрозолей с размером менее 10 нм приводит к ошибочному выводу о наличии в исследуемой атмосфере крупнодисперсных радиоактивных аэрозолей.

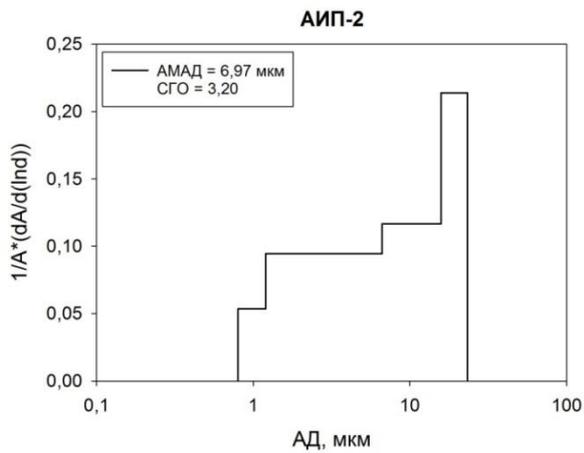
Три различных импакторных устройства были испытаны в атмосфере с высокой концентрацией дочерних продуктов распада (ДПР) радона и торона. Среднее значение эквивалентной равновесной объемной активности (ЭРОА) радона и торона составляло 2 500 и 350 Бк/м<sup>3</sup> соответственно. Отбор проб выполнялся при фиксированном объемном расходе воздуха 30 л/мин, при температуре и относительной влажности 15 – 25 °С и 45 – 70 % соответственно. В таблице 5 представлена измеренная характеристика 50 %-проницаемости каскадных импакторов в качестве основной оценки распределения аэрозольных частиц по размерам.

Таблица 5 – Эффективный каскадный аэродинамический диаметр  $d_{50\%}$ , мкм

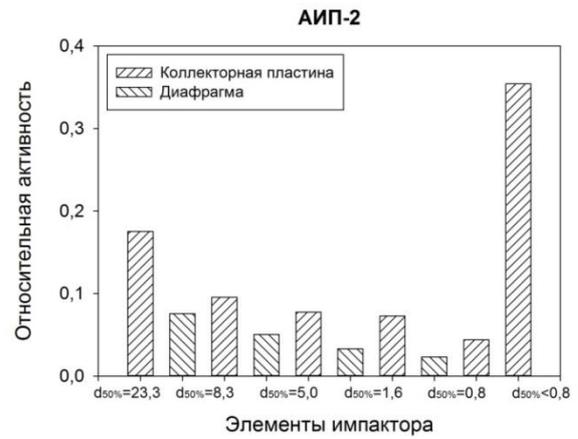
№ каскада	АИП-2	Марк-3	ЮуИБФ
1	23,3	26,4	9,9
2	8,3	12,2	6,5
3	5,0	4,6	3,1
4	1,6	2,4	1,8
5	0,8	1,4	0,9
6	–	0,8	0,3
7	–	0,4	–

При проведении эксперимента был выполнен анализ активности на коллекторных пластинах в предположении штатной работы импакторных устройств. Результаты анализа активности выполнялись методом, представленным в работе

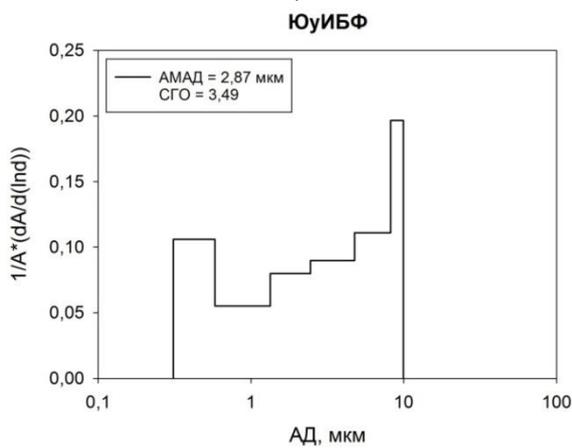
*Hinds W., 1999.* Результаты расчета АМАД по измерениям в радоновом боксе представлены на рисунке 4 (а в).



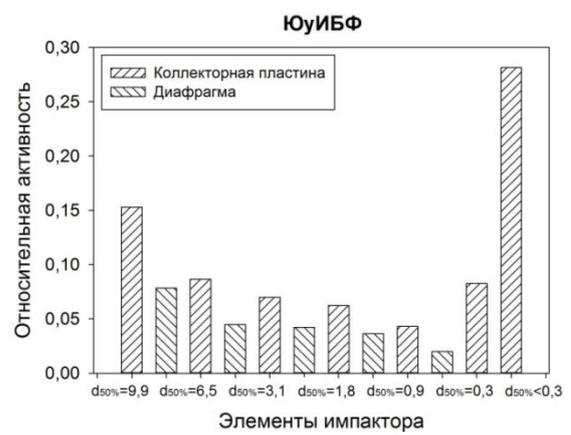
а)



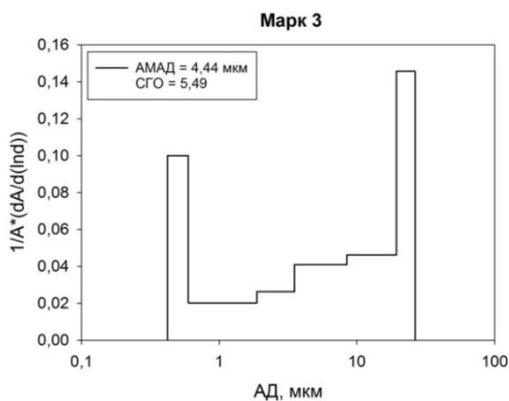
г)



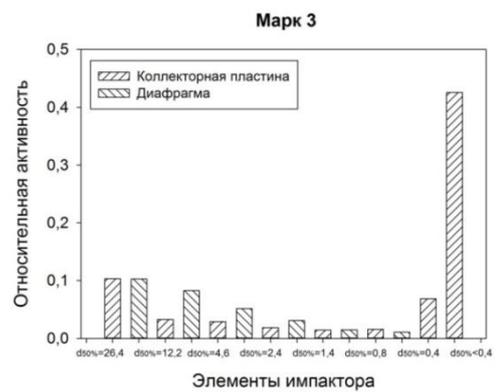
б)



д)



в)



е)

Рисунок 4 – Значения АМАД и распределение активности аэрозолей ДПР радона на улавливающих элементах каскадных импакторов, полученные в предположении «корректной» работы каскадных импакторов

Полученные спектры явно не соответствуют известному распределению активности по АМАД в стационарных условиях атмосферы ДПР района (*Porstendorfer J., 1996, 2001*). Учитывая высокую долю «неприсоединенной» фракции, результаты свидетельствуют об осаждении ультрадисперсных частиц на импакторе. Для проверки справедливости предположения о диффузионном осаждении на улавливающих элементах каскадного импактора были проведены измерения активности не только на коллекторных пластинах, но и на тыльных сторонах диафрагменных пластин. На рисунке 4 (г, е) представлены результаты определения ЭРОА радона на улавливающих элементах каскадных импакторов, используемых в этой работе.

Из рисунка 4 (г, е) видно, что для импакторов различной конструкции с различным количеством каскадов заметен эффект оседания ультрадисперсных аэрозолей на тыльной стороне диафрагмы каждого каскада импактора. Оседание на коллекторной пластине каскада сопоставимо с тыльной стороной диафрагмы для импакторов АИП-2 и ЮуИБФ, что дает возможность сделать вывод, что в межкаскадном пространстве происходит диффузионное осаждение аэрозолей. Для импактора Марк-3 подобный эффект тоже наблюдался, но осаждение ультрадисперсных аэрозолей на тыльной стороне диафрагменной пластины гораздо заметнее, поскольку в качестве улавливающего элемента каждого каскада использовалась фильтровальная бумага, что могло способствовать увеличению турбулентности воздушных потоков в пространстве между коллекторной пластиной и диафрагмой. Доля ЭРОА, осевшая на каскадах импакторов, находится в диапазоне от 45 до 65 % от общей уловленной активности.

Увеличение активности на последних каскадах импакторов Марк-3 и ЮуИБФ свидетельствует об инерционном осаждении конденсационной моды ДПР радона с АМАД  $\sim 0,3$  мкм (*Porstendorfer J., 2001*).

Для подтверждения того, что наблюдаемый эффект характерен не только для лабораторных условий, но и для реальных рабочих мест, были проведены измерения дисперсности радиоактивных аэрозолей в атмосфере с высоким содержанием дочерних продуктов распада торона на базе хранения монацитового концентрата предприятия ГКУСО «УралМонацит» в г. Красноуфимске (*Жуковский М, 2012*). В ряде экспериментов с импакторами ЮуИБФ и Марк-3 в тороновой атмосфере были удалены последние каскады для снижения аэродинамического сопротивления устройства. Результаты расчета АМАД по измерениям в складах с монацитовым концентратом представлены на рисунке 5 (а в). На рисунке 5 (г е) представлены результаты определения ЭРОА торона на улавливающих элементах каскадных импакторов, используемых в этой работе.

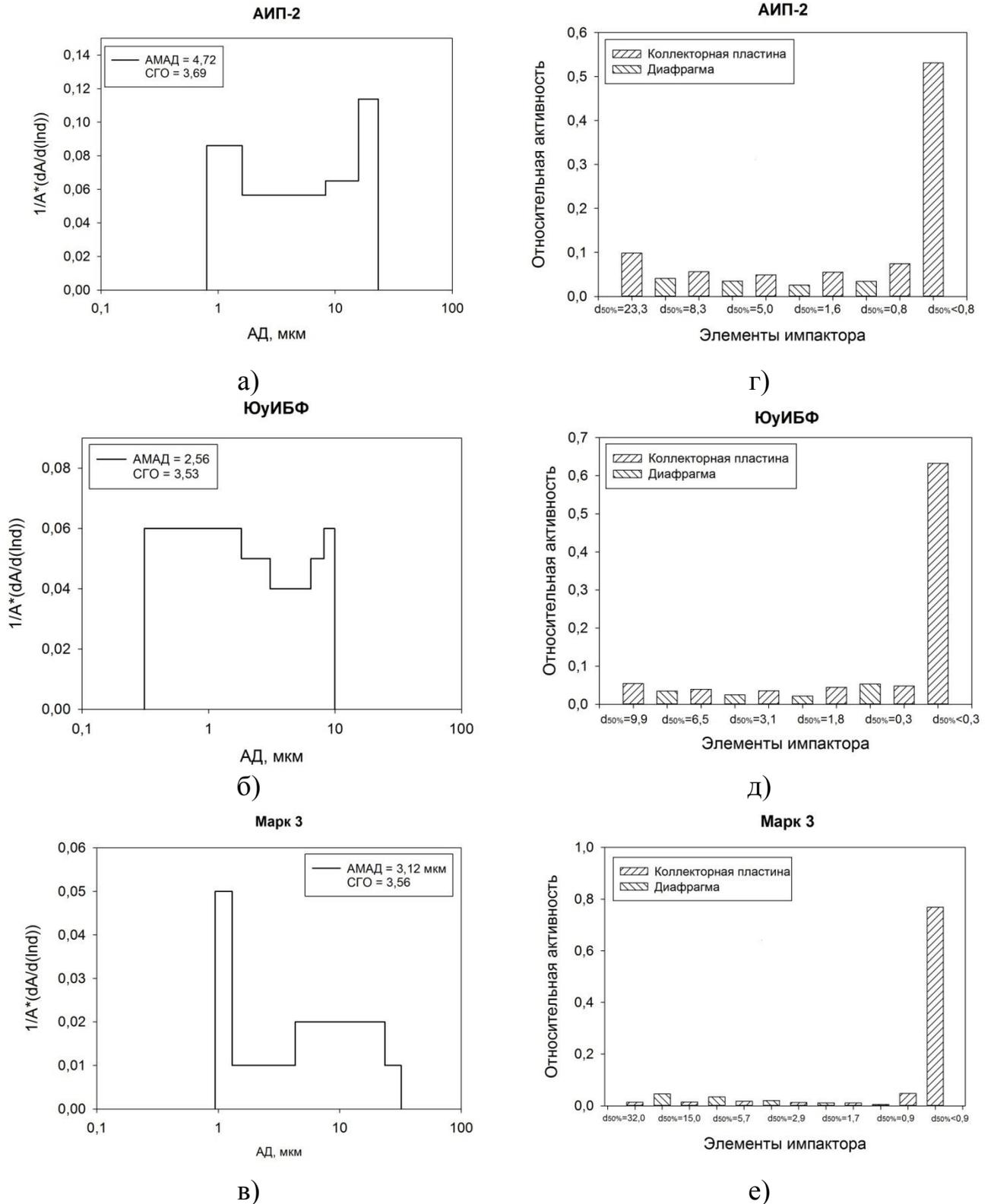


Рисунок 5 – Значения АМАД и распределение активности аэрозолей ДПР торона на улавливающих элементах каскадных импакторов, полученные в предположении «корректной» работы каскадных импакторов.

Так же как и в экспериментах в радоновом боксе, наблюдается сопоставимое распределение активности между коллекторной пластиной и тыльной стороной диафрагменной пластины. Наличие мелкодисперсных радиоактивных аэрозолей с АМТД менее 50 нм в атмосфере рабочего места приводит к некорректной оценке распределения радиоактивных аэрозолей по размерам, выполняемой каскадными устройствами на основе инерционного осаждения (импакторы) в рамках специального мониторинга.

Для снижения влияния ультрадисперсной фракции аэрозольных частиц ДПР Rn-222 и Rn-220 перед каскадным импактором был установлен тот же набор сетчатых экранов из трех стальных сеток, которые использовались в радоновом боксе для определения доли «неприсоединенной» фракции. Таким образом, эти экраны играют роль «диффузионного фильтра», улавливающего ультрадисперсные аэрозоли ДПР радона. В таблицах 6 и 7 представлены результаты измерения доли ЭРОА радона импакторными устройствами с предустановленными сетчатыми элементами.

Таблица 6 – Среднее значение доли ЭРОА Rn-222 на улавливающих элементах

Элемент отбора пробы	АИП-2		ЮуИБФ		Марк3	
	Относительная величина ЭРОА		Относительная величина ЭРОА		Относительная величина ЭРОА	
Сетчатые элементы	–	0,75±0,18	–	0,76±0,08	–	0,76±0,09
Каскады импактора	0,60±0,20	0,02±0,01	0,72±0,08	0,04±0,01	0,58±0,09	0,04±0,01
Аналитический фильтр	0,40±0,20	0,23±0,18	0,28±0,08	0,20±0,08	0,42±0,09	0,20±0,09

Примечание: ± указано стандартное отклонение среднего значения.

Данные таблиц 6 и 7 демонстрируют, что при использовании сетчатых экранов практически отсутствует оседание радиоактивных аэрозолей ДПР радона и торона на улавливающих элементах каскадных импакторов.

Активность, осевшая на АИП-2, не позволяет сделать заключение о характере распределения аэрозолей. Ненулевые значения активности на последних каскадах импакторов Марк-3 и ЮуИБФ с  $d_{50\%} = 0,3$  мкм указывают на присутствие в атмосфере характерной конденсационной моды с АМАД  $\sim 0,3$  мкм (Porstendorfer J., 2001).

Таблица 7 – Среднее значение доли ЭРОА Rn-220 на улавливающих элементах

Элемент отбора пробы	АИП-2		ЮуИБФ		Марк3	
	Относительная величина ЭРОА		Относительная величина ЭРОА		Относительная величина ЭРОА	
Сетчатые элементы	–	0,55±0,18	–	0,21±0,07	–	0,45±0,15
Каскады импактора	0,47±0,16	0,05±0,02	0,38±0,13	0,04±0,01	0,23±0,08	0,04±0,01
Аналитический фильтр	0,53±0,16	0,39±0,18	0,63±0,13	0,75±0,07	0,77±0,08	0,51±0,15

Примечание: ± указано стандартное отклонение среднего значения

## ОСНОВНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ РАБОТЫ

1. Разработан, апробирован и аттестован метод определения вклада различных форм йода в атмосфере в суммарную объемную активность этого радионуклида. Он предусматривает использование не менее семи слоев фильтров, которые имеют однородное содержание сорбирующего материала. Разработанный метод позволяет просто и надежно получить информацию о химических соединениях радиоактивного йода. Достоверные данные о различных формах йода позволят избежать излишнего консерватизма при оценке эффективной дозы на население.

2. В исследовании обнаружено, что радиоактивный изотоп I-131 в воздухе рабочей зоны реакторной установки ИВВ-2М и в выбросах российских АЭС находятся преимущественно в виде газообразных соединений. Соотношение между различными формами может изменяться для каждого типа реакторной установки и технологических процессов. Доказано, что наиболее радиационно опасный изотоп I-131 при работе реакторных установок ИВВ-2М и российских АЭС представлен в основном труднораспространяемыми газообразными соединениями. Полученные данные позволяют внести необходимые поправки при оценке эффективной дозы облучения населения, которая может быть завышена в 1,5 раза по сравнению с консервативным подходом.

3. Исследованы размеры радиоактивных аэрозолей, представленные дочерними продуктами распада техногенных инертных газов Xe-138 и Kr-88, которые находятся в области с АМТД 0,6, 7 и 50 нм. Полученные результаты позволяют сделать необходимые поправки при оценке дозы облучения персонала.

4. Многочисленными экспериментами доказано, что при распаде ИРГ радиоактивные дочерние продукты образуют кластеры «неприсоединенной» фракции аналогичные ДПР радона. Механизмы образования аэрозольных частиц ДПР радиоактивных благородных газов техногенного происхождения схожи с ранее изученными процессами образования аэрозолей ДПР природного газа радона.

5. Исследованы особенности появления ложной информации о присутствии крупнодисперсных аэрозолей в случае использования каскадных импакторов при наличии ультрадисперсных частиц в исследуемой атмосфере.

6. Разработан способ для устранения влияния диффузионного осаждения ультрадисперсных частиц с помощью нескольких стальных сетчатых экранов, установленных перед каскадным импактором по линии потока воздуха в процессе отбора пробы. Данный подход обеспечит эффективное удаление ультрадисперсных аэрозолей из воздушного потока в импакторе за счет их диффузионного осаждения на сетчатом экране, что позволит более достоверно определять долю

фракции крупнодисперсных частиц, осаждаемых на улавливающих элементах импактора, и долю ультрадисперсных частиц, осаждаемых на сетчатом экране.

Результаты диссертационной работы могут быть использованы для разработки новых методических указаний по контролю газоаэрозольных компонентов в атмосфере предприятий ЯТЦ. Результаты данной работы могут быть учтены уже в существующих методических подходах по контролю радиоактивных веществ в исследуемой атмосфере.

### СПИСОК ОСНОВНЫХ ПУБЛИКАЦИЙ ПО ТЕМЕ ДИССЕРТАЦИИ

#### Статьи в рецензируемых научных журналах, определенных ВАК:

1. **Vasyanovich M.E.** Thoron progeny size distribution in monazite storage facility / M. Rogozina, M. Zhukovsky, **M. Vasyanovich**, et al. // *Radiation Protection Dosimetry*. – 2014. – Vol. 162, № 1 – 2. – P. 1-4; 0,4 п.л./ 0,25 п.л. (Web of Science, Scopus)

2. **Vasyanovich M.E.** Determination of the physicochemical forms of iodine isotopes in the IVV-2M reactor ventilation system / A.A. Ekidin, **M.E. Vasyanovich**, D.V. Markov, et al. // *Atomic Energy*. – 2017. – Vol. 121, № 4. – P. 308–311; 0,25 п.л. / 0,15 п.л. (Web of Science, Scopus)

3. **Vasyanovich M.E.** Determination of the size distribution of radioactive aerosols in the IVV-2M reactor room atmosphere / **M.E. Vasyanovich**, M.V. Zhukovsky, A.A. Ekidin, et al. // *Atomic Energy*. – 2017. – Vol. 121, № 4. – P. 312–315; 0,25 п.л. / 0,15 п.л. (Web of Science, Scopus)

4. **Васянович М.Е.** Влияние ультрадисперсных аэрозолей ДПР радона на измерения, выполняемые при помощи каскадных импакторов / **М.Е. Васянович**, М.Ю. Мостафа, М.В. Жуковский и др. // *АНРИ*. – 2017. – № 2. – С. 32–39. 0,5 п.л. / 0,4 п.л.

5. **Vasyanovich M.E.** Ultrafine aerosol influence on the sampling by cascade impactor / **M. Vasyanovich**, M. Zhukovsky, M. Mostafa // *Radiation Protection Dosimetry*. – 2017. – Vol. 177, № 1 – 2. – P. 1-4; 0,4 п.л./ 0,25 п.л. (Web of Science, Scopus).

6. **Vasyanovich M.E.** Control of aerosol and gaseous compounds of iodine isotopes in the ventilation system of the IVV-2M reactor facility / A.A. Ekidin, **M.E. Vasyanovich**, K.L. Antonov, et al. // *Physics of Atomic Nuclei*. – 2018. – Vol. 81, № 10. – P. 1494-1498; 0,44 п.л. / 0,28 п.л. (Scopus)

7. **Vasyanovich M.E.** Radioiodine release into the atmosphere during normal operation of nuclear power plants / A.A Ekidin., K.L. Antonov, **M.E. Vasyanovich**, et al. // *Radiochemistry*. – 2019. – Vol. 61, №3. – P. 352-364; 0,8 п.л. / 0,45 п.л. (Scopus)

### Свидетельство на программу для ЭВМ

8. Программное обеспечение для расчета объемной активности органического и элементарного I-131: свидетельство об офиц. регистрации программы для ЭВМ № 2018664386 Российской Федерации / **Васянович М.Е.**, Васильев А.В., Екидин А.А., Антонов К.Л.; заявитель и правообладатель ООО «Агентство экологической безопасности «Альфа-Х91» № 2018619557 от 07.09.2018; зарегистрирована в реестре программ для ЭВМ 15.11.2018 г. – [1] с.

#### Другие публикации:

9. Vasyanovich M. Size distribution assessment of radioactive aerosols at research reactor / **M. Vasyanovich**, A. Ekidin, I. Russkikh et al. // Book Abstract. Fourth international conference on radiation and application in various fields of research. – 2016. – P. 252–253. 0,1 п.л. / 0,05 п.л.

10. Екидин А.А., **Васянович М.Е.**, Капустин И.А., и др. Совершенствование методов контроля йода-131 в выбросах атомных станций // Вопросы радиационной безопасности. – 2016. – Т. 83, № 3. – С. 17–24. 0,5 п.л. / 0,3 п.л.

11. Vasyanovich M. Investigation of ultrafine aerosol influence at cascade impactor sampling / **M. Vasyanovich**, M. Zhukovsky, M. Mostafa // 8th International Conference on Protection against Radon at Home and at Work. – Prague, Czech Republic, 2016. – P. 27. 0,1 п.л. / 0,05 п.л.

12. Васянович М.Е. Совершенствование методов контроля радиоактивных веществ в газовой среде при эксплуатации ядерных реакторов / **М.Е. Васянович**, А.А. Екидин, М.В. Жуковский // Тезисы докладов «Одиннадцатые Петряновские и Вторые Фуксовские чтения». – 2017. – С. 83–84. 0,1 п.л. / 0,05 п.л.